

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-288251

(43)Date of publication of application : 16.10.2001

(51)Int.Cl.

C08G 59/62  
C08G 59/68  
C08J 5/24  
C08L 63/00  
C08L 71/12

(21)Application number : 2000-103002

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC WORKS LTD

(22)Date of filing : 05.04.2000

(72)Inventor : MAEKAWA TETSUYA  
YOSHIMURA TAKESHI

## (54) EPOXY RESIN COMPOSITION AND INSULATING BASE

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an epoxy resin composition capable of giving an insulating base having a low coefficient of thermal expansion while keeping intrinsic properties such as a glass transition temperature and a permittivity.

SOLUTION: Provided is an epoxy resin composition comprising an epoxy resin, a phenol-modified polyphenylene oxide, and an aminic curing agent, wherein the phenol-modified polyphenylene oxide has a number-average molecular weight in the range of 700 to below 1,000 and is contained in an amount of 50-90 wt.% (in terms of the solids content) based on the epoxy resin.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

16.12.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-288251

(P2001-288251A)

(43) 公開日 平成13年10月16日 (2001. 10. 16)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
C 0 8 G 59/62		C 0 8 G 59/62	4 F 0 7 2
59/68		59/68	4 J 0 0 2
C 0 8 J 5/24	C E C	C 0 8 J 5/24	C E C 4 J 0 3 6
C 0 8 L 63/00		C 0 8 L 63/00	A
71/12		71/12	
審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 7 頁)			

(21) 出願番号 特願2000-103002(P2000-103002)

(22) 出願日 平成12年4月5日 (2000. 4. 5)

(71) 出願人 000005832

松下電工株式会社

大阪府門真市大字門真1048番地

(72) 発明者 前川 哲也

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

(72) 発明者 吉村 毅

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

(74) 代理人 100111556

弁理士 安藤 淳二 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物及び絶縁基板

(57) 【要約】

【課題】 ガラス転移温度や誘電率等の特性を維持すると共に、低膨張率な絶縁基板を得ることのできるエポキシ樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 エポキシ樹脂と、フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドと、アミン系硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物であって、上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドの数平均分子量が700以上1000未満の範囲であると共に、この上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドがエポキシ樹脂に対し固形分換算で50～90重量%の範囲で含有する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 エポキシ樹脂と、ポリフェニレンオキサ이드とフェノール化合物を反応開始剤の存在下で再分配反応させて得られるフェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドと、アミン系硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物において、上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドの数平均分子量が 700 以上 1000 未満の範囲であると共に、この上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドがエポキシ樹脂に対し固形分換算で 50～90 重量%の範囲で含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項 2】 上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドは、フェノール化合物にテトラブromビスフェノール A を用いて再分配反応させて得られたものでことを特徴とする請求項 1 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 3】 上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドは、上記フェノール化合物にノボラックフェノールを用いて再分配反応させて得られたものでことを特徴とする請求項 1 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 4】 上記反応開始剤が、過酸化ベンゾイル、t-ブチルペルオキシベンゾエイト、ジ- t-ブチルペルオキシイソフタレート、ジクミルペルオキサイド、ジ- t-ブチルペルオキサイドで選ばれた過酸化物のうちの少なくとも 1 種であることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 3 いずれか記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 5】 上記反応開始剤が、t-ブチルトリメチルシリルペルオキサイド、クメンヒドロペルオキシド、t-ブチルヒドロペルオキサイドのうちの少なくとも 1 種であることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 3 いずれか記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 6】 上記反応開始剤が、アゾイソブチロニトリルであることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 3 いずれか記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 7】 請求項 1 乃至請求項 6 いずれか記載のエポキシ樹脂組成物を基材に含浸し、この樹脂を硬化させてなる絶縁基板。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、エポキシ樹脂と、ポリフェニレンオキサイドとフェノール化合物を反応開始剤の存在下で再分配反応させて得られるフェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドと、アミン系硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物に関し、具体的には、プリント配線基板等の絶縁基板の材料として用いられるエポキシ樹脂組成物に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 プリント配線基板等の絶縁基板の材料として用いられるエポキシ樹脂組成物が汎用されている。

半導体等の電子部品の高集積化に伴い、優れた誘電率等

の高周波特性や高いガラス転移温度を有する絶縁基板の材料として、エポキシ樹脂に、ポリフェニレンオキサイドとフェノール化合物を反応開始剤の存在下で再分配反応させて得られるフェノール変成してなると、アミン系硬化剤とを含有させたエポキシ樹脂組成物が知られている（例えば、特開平 9-291148 号公報、特開平 10-292031 号公報等）。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 近年、携帯電話やパソコン等の電子機器が、さらなる小型化や信号伝達速度の向上が要望されているため、プリント配線基板は、ますます多層化されている。多層化したプリント配線基板の作製にあたっては、熱処理を行うため熱膨張に伴うクラックが発生することがないように、より低膨張率の材料が求められている。

【0004】 本発明は上記の事情に鑑みてなされたもので、その目的とするところは、ガラス転移温度や誘電率等の特性を維持すると共に、より低膨張率な絶縁基板を得ることのできるエポキシ樹脂組成物を提供することにある。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】 請求項 1 記載のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂と、ポリフェニレンオキサイドとフェノール化合物を反応開始剤の存在下で再分配反応させて得られるフェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドと、アミン系硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物において、上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドの数平均分子量が 700 以上 1000 未満の範囲であると共に、この上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドがエポキシ樹脂に対し固形分換算で 50～90 重量%の範囲で含有することを特徴とする。

【0006】 本発明者は、上記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、従来のエポキシ樹脂にフェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドと、アミン系硬化剤とを含有させたエポキシ樹脂組成物にあっては、上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドは、数平均分子量が 1000～3000 を用いてエポキシ樹脂組成物中にエポキシ樹脂に対し 30～40 重量%（固形分換算）で含有したものが汎用されており、この数平均分子量が 1000～3000 のフェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドを用いた場合エポキシ樹脂に対し 40 重量%を超えて含有したエポキシ樹脂組成物を作製しようとしても、ガラス繊維からなる基材に浸透が難しく作製が困難なものである。そこで、数平均分子量が 700 以上 1000 未満のフェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドを作製すると、エポキシ樹脂に対し 50 重量%以上の比率で含有したエポキシ樹脂組成物が、ガラス繊維からなる基材に容易に浸透することができると共に、このエポキシ樹脂組成物を含有し

た基材を用いた場合、ガラス転移温度や誘電率等の特性を維持すると共に、低膨張率な絶縁基板を得ることを見出し、本発明の完成に至ったものである。

【0007】なお、本発明でいうフェノール変成してなるポリフェニレンオキシドの数平均分子量は、ゲル浸透クロマトグラフィーを用いて分子量分布を測定して得られるものである。

【0008】請求項2記載のエポキシ樹脂組成物は、請求項1記載のエポキシ樹脂組成物において、上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキシドは、フェノール化合物にテトラブロムビスフェノールAを用いて再分配反応させて得られたものでことを特徴とする。上記によって、エポキシ樹脂組成物中にフェノール変成してなるポリフェニレンオキシドがエポキシ樹脂に対し50～90重量%の比率で含有した組成物を得ることができるものである。

【0009】請求項3記載のエポキシ樹脂組成物は、請求項1記載のエポキシ樹脂組成物において、上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキシドは、上記フェノール化合物にノボラックフェノールを用いて再分配反応させて得られたものでことを特徴とする。上記によって、エポキシ樹脂組成物中にフェノール変成してなるポリフェニレンオキシドがエポキシ樹脂に対し50～90重量%の比率で含有した組成物を得ることができるものである。

【0010】請求項4記載のエポキシ樹脂組成物は、請求項1乃至請求項3いずれか記載のエポキシ樹脂組成物において、上記反応開始剤が、過酸化ベンゾイル、*t*-ブチルペルオキシベンゾエイト、ジ-*t*-ブチルペルオキシイソフタレート、ジクミルペルオキシド、ジ-*t*-ベチルペルオキシドで選ばれた過酸化物のうちの少なくとも1種であることを特徴とする。

【0011】請求項5記載のエポキシ樹脂組成物は、請求項1乃至請求項3いずれか記載のエポキシ樹脂組成物において、上記反応開始剤が、*t*-ブチルトリメチルシリルペルオキシド、クメンヒドロペルオキシド、*t*-ブチルヒドロペルオキシドのうちの少なくとも1種であることを特徴とする。

【0012】請求項6記載のエポキシ樹脂組成物は、請求項1乃至請求項3いずれか記載のエポキシ樹脂組成物において、上記反応開始剤が、アゾイソブチロニトリルであることを特徴とする。

【0013】請求項7記載の絶縁基板は、請求項1乃至請求項6いずれか記載のエポキシ樹脂組成物を基材に含浸し、この樹脂を硬化させてなるものである。上記によって、フェノール変成してなるポリフェニレンオキシドを含有するエポキシ樹脂組成物の浸透が良好であるので、ガラス転移温度や誘電率等の特性を維持すると共に、低膨張率な絶縁基板を得ることができるものである。

#### 【0014】

【発明の実施の形態】本発明のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂と、ポリフェニレンオキシドとフェノール化合物を反応開始剤の存在下で再分配反応させて得られるフェノール変成してなるポリフェニレンオキシドと、アミン系硬化剤とを含有するものである。

【0015】上記エポキシ樹脂組成物に用いられるフェノール変成してなるポリフェニレンオキシドは、数平均分子量が700以上1000未満のものであり、上記フェノール化合物にテトラブロムビスフェノール、あるいは、ノボラックフェノールを用いたものが、好適である。上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキシドの数平均分子量が、1000以上であると、エポキシ樹脂に対し固形分換算で50以上の比率のエポキシ樹脂組成物を作製した場合、ガラス繊維からなる基材に浸透が難しいものである。また、上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキシドの数平均分子量が、700未満であると、エポキシ樹脂組成物を加熱しエポキシ樹脂を硬化する際に、未反応物として残存する恐れがある。上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキシドの数平均分子量が、700以上1000未満であると、エポキシ樹脂に対し固形分換算で50～90重量%したエポキシ樹脂組成物を作製できるので、このエポキシ樹脂組成物がガラス繊維からなる基材に、容易に浸透することができるものである。

【0016】上記フェノール化合物にテトラブロムビスフェノールAを用いたポリフェニレンオキシドは、ポリフェニレンオキシドとテトラブロムビスフェノールAを加熱溶解した後に、反応開始剤を配合して再分配反応させて、作製することができる。なお、テトラブロムビスフェノールAの配合量は、ポリフェニレンオキシド100重量部に対して20～60重量部が適量である。

【0017】上記反応開始剤は、ポリフェニレンオキシドとテトラブロムビスフェノールAを、その存在下で再分配反応させるものであり、例えば、過酸化ベンゾイル、*t*-ブチルペルオキシベンゾエイト、ジ-*t*-ブチルペルオキシイソフタレート、ジクミルペルオキシド、ジ-*t*-ベチルペルオキシド等の過酸化物や、*t*-ブチルトリメチルシリルペルオキシド、クメンヒドロペルオキシド、*t*-ブチルヒドロペルオキシドの過酸化物や、アゾイソブチロニトリル等が挙げられる。上記反応開始剤のうち、過酸化ベンゾイル、*t*-ブチルペルオキシベンゾエイト、ジ-*t*-ブチルペルオキシイソフタレート、ジクミルペルオキシド、ジ-*t*-ベチルペルオキシド等の過酸化物の配合量は、ポリフェニレンオキシド100重量部に対して1～10重量部が好ましく、4～6重量部がより好ましい。また、上記反応開始剤のうち、*t*-ブチルトリメチルシリルペルオキシド、クメンヒドロペルオキシド、*t*-ブチルヒドロペ

ルオキシドの過酸化物は、反応停止剤と併用して用いることが好適である。この反応停止剤としては、pベンゾキノン等のキノン化合物が挙げられる。上記 t-ブチルトリメチルシリルペルオキシド、クメンヒドロペルオキシド、t-ブチルヒドロペルオキシドからなる過酸化物の配合量は、ポリフェニレンオキシド 100 重量部に対して 5~20 重量部が好ましく、10~15 重量部がより好ましい。

【0018】また、上記フェノール化合物にノボラックフェノールを用いたポリフェニレンオキシドは、ポリフェニレンオキシドとノボラックフェノールを加熱溶解した後に、反応開始剤を配合して再分配反応させて、作製することができる。なお、ノボラックフェノールの配合量は、ポリフェニレンオキシド 100 重量部に対して 10~20 重量部が適量である。上記反応開始剤としては、上述と同様のものを用いることができる。また、上記反応開始剤の配合量も上述と同様に使用することが好ましい。

【0019】これら変成したポリフェニレンオキシドを製造する再分配反応の条件としては、例えば、トルエン、ベンゼン、キシレン等の有機溶媒を用い、上記ポリフェニレンオキシドと、テトラブロムビスフェノール A 又はノボラックフェノールと、反応開始剤を攪拌しながら、80~100℃で 10~100 分程度加熱して行う。

【0020】上記エポキシ樹脂組成物に用いられるエポキシ樹脂としては、絶縁基板に用いられる各種のエポキシ樹脂が用いられ、例えば、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂、ビスフェノール S 型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、イソシアヌレート型エポキシ樹脂、ヒダントイン型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、多官能エポキシ樹脂、及び、これらエポキシ樹脂をブロム化したエポキシ樹脂等が挙げられる。

【0021】上記エポキシ樹脂組成物に用いられるアミン系硬化剤としては、ジアミノジフェニルメタン、メタフェニレンジアミン、トリレンジアミン、アンモニア、トリエチルアミン、ジエチルアミン等が挙げられる。

【0022】上記エポキシ樹脂組成物には硬化反応を促進するために、硬化促進剤の添加が現実的である。上記硬化促進剤としては、例えば、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール等のイミダゾール類、1, 8-ジアザビシクロ [5. 4. 0] ウンデセン-7、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン等の三級アミン類等が挙げられる。

【0023】上記エポキシ樹脂組成物は、上記フェノール変成してなるポリフェニレンオキシドの数平均分子量が 700 以上 1000 未満であるので、上記フェノール

ル変成してなるポリフェニレンオキシドがエポキシ樹脂に対し固形分換算で 50~90 重量%の範囲で含有することができるものである。

【0024】本発明の絶縁基板は、上記エポキシ樹脂組成物を基材に含浸してプリプレグを得、このプリプレグの樹脂を硬化させて作製するものであり、例えば、プリント配線板等の基板として用いられる。上記基材は、ガラス繊維クロス、ガラス不織布等のガラス基材が挙げられる。上記プリプレグを得る方法としては、例えば、トルエン等の溶剤で希釈したエポキシ樹脂組成物中に基材を浸漬して含浸させた後、加熱して溶剤の除去や、エポキシ樹脂組成物のエポキシ樹脂を半硬化させて製造する。基材に含浸する樹脂量は特に限定しないが、乾燥後の樹脂含有量が、プリプレグの重量に対して 30~70 重量%となるように含浸することが好適である。その後、得られたプリプレグの所定枚数と銅箔等の金属箔を重ねて被圧体とし、この被圧体を加熱・加圧して積層板を製造することができる。さらに、この積層板を用い、上記金属箔をエッチング等により回路を形成するとプリント配線板が得られる。

【0025】上記絶縁基板は、フェノール変成してなるポリフェニレンオキシドを含有するエポキシ樹脂組成物の浸透が良好であるので、ガラス転移温度や誘電率等の特性を維持すると共に、低膨張率な基板となる。

【0026】

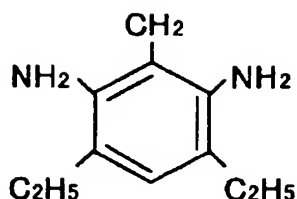
【実施例】（実施例 1）まず、フェノール化合物にテトラブロムビスフェノール A を用いたポリフェニレンオキシドを作製した。ポリフェニレンオキシド [日本 G. E. プラスチック株式会社製] を 265 重量部（以下部と記す）、テトラブロムビスフェノール A (TBB A と記す) [プロモケム株式会社製] を 130 部、トルエンを 550 部配合して加熱溶解し、このなかに反応開始剤として過酸化ベンゾイル (BPO と記す) [日本油脂株式会社製] を 20 部配合し、90℃にて 90 分攪拌し、再分配反応させた。この反応生成物の数平均分子量は、ゲル浸透クロマトグラフィー [HLC-8210: 東ソー株式会社製] を用いて測定したところ、980 であった。

【0027】次に、得られたフェノール A 変成したポリフェニレンオキシドを 500 部、エポキシ樹脂としてビスフェノール A 型エポキシ樹脂 [日本化薬株式会社製、品名 BREN-S] を 185 部、アミン系硬化剤として化 1 で表される構造式を有するアミン化合物 [エタキュア: 油化シェル株式会社製] を 5 部、硬化促進剤として 2-エチル-4-メチルイミダゾール [四国化成株式会社製] を 1 部配合し、室温で 30 分攪拌してエポキシ樹脂組成物を得た。なお、フェノール A 変成したポリフェニレンオキシドの配合量比率は、エポキシ樹脂に対し 60 重量%である。

【0028】

7

## 【化1】



【0029】（実施例2）先ず、フェノール化合物にノボラックフェノールを用いたポリフェニレンオキサイドを作製した。ポリフェニレンオキサイド〔日本G. E. プラスチック株式会社製〕を265部、ノボラックフェノール（NPと記す）〔荒川化学株式会社製〕を49部、トルエン500部配合して加熱溶融し、このなかに反応開始剤として過酸化ベンゾイル（BPO）〔日本油脂株式会社製〕を20部配合し、90℃にて90分攪拌し、再分配反応させた。この反応生成物の数平均分子量は、実施例1と同様にして測定したところ、762であった。

【0030】その後、フェノールA変成したポリフェニレンオキサイドに上記末端がノボラックフェノール変成したポリフェニレンオキサイドを用いた以外は、実施例1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を作製した。

【0031】（実施例3）先ず、フェノール化合物にテトラブromビスフェノールAを用いたポリフェニレンオキサイドを作製した。ポリフェニレンオキサイド〔日本G. E. プラスチック株式会社製〕を265部、テトラブromビスフェノールA（TBBA）〔プロモケム株式会社製〕を130部、トルエンを550部配合して加熱溶融し、このなかに反応開始剤としてアゾイソブチロニトリル（AIBNと記す）〔ナカライテスク株式会社製〕を20部配合し、90℃にて90分攪拌し、再分配反応させた。この反応生成物の数平均分子量は、実施例1と同様にして測定したところ、894であった。

【0032】その後、フェノールA変成したポリフェニレンオキサイドに上記テトラブromビスフェノールA変成したポリフェニレンオキサイドを用いた以外は、実施例1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を作製した。

【0033】（実施例4）先ず、フェノール化合物にテトラブromビスフェノールAを用いたポリフェニレンオキサイドを作製した。ポリフェニレンオキサイド〔日本G. E. プラスチック株式会社製〕を265部、テトラブromビスフェノールA（TBBA）〔プロモケム株式会社製〕を130部、トルエンを550部配合して加熱溶融し、このなかに反応開始剤としてt-ブチルヒドロペルオキサイド（tBHOと記す）〔日本油脂株式会社製〕を27部配合し、90℃にて90分攪拌した後に、反応停止剤としてpベンゾキノン〔ナカライテスク株式会社製〕を5部配合して再分配反応させた。この反応生成物の数平均分子量は、実施例1と同様にして測定したところ、928であった。

8

【0034】その後、フェノールA変成したポリフェニレンオキサイドに上記末端がテトラブromビスフェノールA変成したポリフェニレンオキサイドを用いた以外は、実施例1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を作製した。

【0035】（比較例1）実施例1と同様にしてテトラブromビスフェノールA変成したポリフェニレンオキサイドを得た。その後、上記テトラブromビスフェノールA変成したポリフェニレンオキサイドの配合量比率を、エポキシ樹脂に対し40重量%とした以外は、実施例1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を作製した。

【0036】（比較例2）先ず、ポリフェニレンオキサイド〔日本G. E. プラスチック株式会社製〕を265部、ビスフェノールA（BPAと記す）〔プロモケム株式会社製〕を10部、トルエンを550部配合して加熱溶融し、このなかに反応開始剤として過酸化ベンゾイル（BPO）〔日本油脂株式会社製〕を10部配合し、90℃にて90分攪拌し、再分配反応させた。この反応生成物の数平均分子量は、実施例1と同様にして測定したところ、3121と大きいものであった。

【0037】次に、このフェノールA変成したポリフェニレンオキサイド135部、エポキシ樹脂としてブrom化ビスフェノールA型エポキシ樹脂〔日本化薬株式会社製、品名BREN-S〕を190部、アミン系硬化剤として上記化1で表される構造式を有するアミン化合物〔エタキュア：油化シェル株式会社製〕を3部、硬化促進剤として2-エチル-4-メチルイミダゾール〔四国化成株式会社製〕を1部配合し、室温で30分攪拌してエポキシ樹脂組成物を得た。なお、フェノールA変成したポリフェニレンオキサイドの配合量比率は、エポキシ樹脂に対し32重量%である。

【0038】（比較例3）先ず、ポリフェニレンオキサイド〔日本G. E. プラスチック株式会社製〕を265部、ビスフェノールA（BPAと記す）〔プロモケム株式会社製〕を20部、トルエンを550部配合して加熱溶融し、このなかに反応開始剤として過酸化ベンゾイル（BPO）〔日本油脂株式会社製〕を10部配合し、90℃にて90分攪拌し、再分配反応させた。この反応生成物の数平均分子量は、実施例1と同様にして測定したところ、1827と大きいものであった。

【0039】次に、このフェノールA変成したポリフェニレンオキサイド190部、エポキシ樹脂としてブrom化ビスフェノールA型エポキシ樹脂〔日本化薬株式会社製、品名BREN-S〕を190部、アミン系硬化剤として上記化1で表される構造式を有するアミン化合物〔エタキュア：油化シェル株式会社製〕を3部、硬化促進剤として2-エチル-4-メチルイミダゾール〔四国化成株式会社製〕を1部配合し、室温で30分攪拌してエポキシ樹脂組成物を得た。なお、フェノールA変成したポリフェニレンオキサイドの配合量比率は、エポキシ

樹脂に対し40重量%である。

【0040】（比較例4）先ず、ポリフェニレンオキサイド〔日本G. E. プラスチック株式会社製〕を265部、テトラブromビスフェノールA（TBBA）〔プロモケム株式会社製〕を130部、トルエンを550部配合して加熱溶解し、このなかに反応開始剤として $t$ -ブチルヒドロペルオキサイド（ $t$ BHOと記す）〔日本油脂株式会社製〕を27部配合し、90℃にて90分攪拌し、再分配反応させた。この反応生成物の数平均分子量は、実施例1と同様にして測定したところ、6230と

大きいものであった。

【0041】その後、フェノールA変成したポリフェニ\*

	変成フェノール材料	ラジカル開始剤	分子量	重量比率（固形分）
実施例1	TBBA	BPO	980	60%
実施例2	NP	BPO	762	60%
実施例3	TBBA	AIBN	894	60%
実施例4	TBBA	$t$ BHO	928	60%
比較例1	TBBA	BPO	980	40%
比較例2	BPA	BPO	3121	32%
比較例3	BPA	BPO	1827	40%
比較例4	TBBA	$t$ BHO	6230	60%

TBBA:テトラブromビスフェノールA  
NP:ノボラックフェノール  
BPA:ビスフェノールA

\* レンオキサイドに上記テトラブromビスフェノールA変成したポリフェニレンオキサイドを用いた以外は、実施例1と同様にしてエポキシ樹脂組成物を作製した。

【0042】このエポキシ樹脂組成物を、厚み0.1mmのガラス繊維クロス〔旭シェーベル株式会社製、商品名2116L〕に含浸し、140℃で4分間乾燥して樹脂含有率65重量%のプリプレグを作製しようとしたが、浸透が劣り、外観の良好なプリプレグにならず、基板を得ることができなかった。

【0043】

【表1】

BPO:過酸化ベンゾイル  
AIBN:アゾイソブチロニトリル  
 $t$ BHO: $t$ -ブチルヒドロペルオキサイド

【0044】（評価）実施例1～4、及び、比較例1～3のエポキシ樹脂組成物を用いて、評価用の絶縁基板を作製した。得られたエポキシ樹脂組成物を、厚み0.1mmのガラス繊維クロス〔旭シェーベル株式会社製、商品名2116L〕に含浸し、140℃で4分間乾燥して樹脂含有率65重量%のプリプレグを得た。上記プリプレグを8枚重ね、両面に18 $\mu$ mの銅箔〔日鉱グールドフォイル株式会社製、商品名JTC〕を配置して被圧体とし、温度190℃、圧力2MPaの条件で100分加熱・加圧して両面に銅箔が接着された厚み0.8mmの積層板を得た。

【0045】この積層板を用い、熱膨張率（ $\alpha$ ）、ガラス転移温度（ $T_g$ ）を測定し、また、実施例1、2及び比較例2、3の誘電率を測定した。また、プリプレグを用い、反応率を測定した。

【0046】熱膨張率（ $\alpha$ ）、及び、ガラス転移温度（ $T_g$ ）の測定は、JIS-C6481に基づいて、評価用基板を作製して行った。上記熱膨張率（ $\alpha$ ）は、TMA（TAS100：リガク株式会社製）を用い、厚み方向（Z方向）の線膨張率を測定した。この測定条件は、荷重0.005N、昇温速度5℃/min、温度75℃から125℃までで行い、得られた線膨張率チャートから線膨張率を算出した。また、上記ガラス転移温度（ $T_g$ ）は、上記線膨張率チャートの変極点から求めた。

【0047】反応率は、実施例及び比較例で得られたプリプレグを用い、このプリプレグより落とした樹脂粉を、200℃2時間で加熱硬化させた後に、粉碎して熱クロロホルムで抽出した。この抽出量に基づいて反応率を算出した。

【0048】上記誘電率は、JIS-C6481に基づいて測定した。

【0049】結果を表2及び表3に示す。実施例はいずれも、比較例に比べ、ガラス転移温度や誘電率等の特性を維持すると共に、低膨張率なものであることが確認された。

【0050】

【表2】

	$\alpha$ [ppm]	$T_g$ [°C] (TMA)	反応率 [%]
実施例1	54	170	95
実施例2	56	174	98
実施例3	57	172	93
実施例4	54	176	94
比較例1	62	160	95
比較例2	62	160	96
比較例3	60	164	95
比較例4	測定不可	測定不可	89

【0051】

【表3】



	誘電率
実施例1	3.8
実施例2	3.8
比較例1	3.9
比較例2	3.9
比較例3	3.9

## 【0052】

【発明の効果】請求項1～6記載のエポキシ樹脂組成物は、ガラス繊維からなる基材に容易に浸透することがで＊

＊きると共に、この基材を用いた場合、ガラス転移温度や誘電率等の特性を維持すると共に、低膨張率な絶縁基板を得ることができる。

【0053】請求項7記載の絶縁基板は、フェノール変成してなるポリフェニレンオキサイドを含有するエポキシ樹脂組成物の浸透が良好であるので、ガラス転移温度や誘電率等の特性を維持すると共に、低膨張率な基板となる。

---

フロントページの続き

Fターム(参考) 4F072 AA04 AA07 AA09 AB09 AD28  
 AD29 AD42 AD53 AG02 AH02  
 AH21 AH25 AJ04 AK02 AK05  
 AK14 AL13  
 4J002 CD02W CD05W CD06W CD07W  
 CD11W CD13W CD14W CD15W  
 CH07X DF006 EN026 EN076  
 FD146  
 4J036 AA02 AB07 AC15 AD07 AD08  
 AD21 AF06 AF08 DA05 DC02  
 DC03 DC04 DC05 DC06 DC10  
 DC48 FB12 JA08 KA01

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**